中天山$PM_{2.5}$中重金属和多环芳烃污染特征、来源及健康风险评价

柴明辰[1]， 徐国杰[1]， 甄钟秀[2]， 银 燕[1]， 郑博华[3,4]，
陈 魁[5]， 李 斌[3,4]， 李圆圆[3,4]

（1. 南京信息工程大学中国气象局气溶胶与云降水重点开放实验室，江苏 南京 210044；2. 内蒙古大学生态与环境学院，内蒙古 呼和浩特 010021；3. 新疆维吾尔自治区人工影响天气办公室，新疆 乌鲁木齐 830002；4. 新疆人工影响天气工程技术研究中心，新疆 乌鲁木齐 830002；5. 南京信息工程大学应急管理学院，江苏 南京 210044）

摘 要： 为了了解中天山$PM_{2.5}$的污染特征，于2019年7—9月在中天山乌拉斯台地区采集了$PM_{2.5}$样品，分别使用电感耦合等离子体质谱仪（ICP-MS）和气质联用仪（GC-MS）分析了$PM_{2.5}$中重金属和多环芳烃（PAHs）含量，并对$PM_{2.5}$中重金属和PAHs来源和健康效应进行了研究。结果表明：（1）中天山夏秋季$PM_{2.5}$中重金属和PAHs浓度总体偏低；重金属总平均浓度为238.50 $ng\cdot m^{-3}$，各元素平均浓度水平为Fe>Cu>Zn>Pb>Mn>Cr>As>V>Rb>Ni>Co>Se>Cd>Tl，除Fe（139.90 $ng\cdot m^{-3}$）和Cu（78.72 $ng\cdot m^{-3}$）外其余元素平均浓度均在10 $ng\cdot m^{-3}$以下；PAHs总平均浓度为1.37 $ng\cdot m^{-3}$，3环、4环和5~7环的浓度占比分别为3.59%、32.34%和64.07%。（2）观测期间$PM_{2.5}$主要受到来自西部的长距离输送和来自北部与西部的短距离输送影响，还可能受山谷风和边界层变化的影响。（3）正矩阵因子分析（PMF）得到污染源为天然气燃烧与石油源（28.56%）、机动车排放和燃煤（28.46%）、生物质燃烧和工业污染（16.14%）、有色金属冶炼（14.32%）和扬尘（12.52%）。（4）经呼吸道途径直接吸入$PM_{2.5}$中重金属和PAHs对成人和儿童存在一定的致癌风险，非致癌健康风险较低；存在致癌风险的单体是Cr、Co、As、Se元素，其余物质健康风险较低。

关 键 词： $PM_{2.5}$；重金属；多环芳烃；污染特征；来源解析；中天山

文章编号： 1000－6060(2025)03－0391－14(0391～0404)

$PM_{2.5}$是主要的大气污染物之一，颗粒表面可以富集组成复杂且来源多样的有害物质，而且其粒径小、在大气中停留时间长，可以传输较远的距离并易于通过呼吸进入人体，对人体健康和生态环境造成危害[1-4]。重金属元素，包括V、Mn、Co、Cd、Pb等和性质相似的As，在自然环境中不易降解，进入人体后积蓄性强、毒性大，会损害神经系统、肾脏、心肺等多个部位的健康[5-7]。多环芳烃（PAHs）即分子中含有2个以上苯环并以稠环形式相连的芳香族碳氢化合物，是主要由人为活动排放持久性有机污染物，大多数具有对人体的致癌性和致突变性，还会在环境中迁移转化，进一步生成二次气溶胶污染危害生态环境，美国环保署（USEPA）将16种PAHs定为在环境中优先控制的污染物[8-10]。这2类物质都可以吸附在$PM_{2.5}$上成为其有害成分之一，同时它们有部分相同的排放源如燃煤、汽车尾气等，有研究证实$PM_{2.5}$中重金属元素和PAHs浓度存在相关性，将2类物质的浓度特征结合相进行研究能够更全面地了解它们的来源和健康风险[11-13]。

新疆位于亚欧大陆腹地，干旱少雨且易发沙尘

收稿日期： 2024-03-19； **修订日期：** 2024-05-08
基金项目： 国家自然科学基金（42006190）资助
作者简介： 柴明辰（2002-），男，硕士研究生，主要从事大气环境研究. E-mail: chaimingchen@nuist.edu.cn
通讯作者： 徐国杰（1985-），男，博士，副教授，主要从事大气化学、气溶胶物理及化学研究. E-mail: guojiexu@nuist.edu.cn

天气，辐射逆温发生频繁，地理环境不利于大气污染物的清除，因此$PM_{2.5}$整体浓度相对较高；石化资源丰富，能源生产和加工产业多，汽车保有量快速增长，排放重金属和PAHs的潜在源较多，因此有研究新疆$PM_{2.5}$中重金属元素和PAHs的必要性[14-18]。石小翠等[19]在乌鲁木齐市$PM_{2.5}$中重金属的研究中计算的积累指数发现Fe、As、Cu、Hg、Pb为极重污染，Zn为重度污染，来源主要是机动车尾气排放、工业冶金和燃煤及燃油排放。王雨晴等[20]在伊宁市和周边县区居民点$PM_{2.5}$中重金属元素的研究中发现人为源排放Cd、Zn、Bi和Pb等元素较多，重金属元素对成年男性、女性和儿童的致癌风险均大于可忽略阈值。Wang等[21]的研究发现乌鲁木齐市全年$PM_{2.5}$中PAHs平均浓度为448.14 $ng\cdot m^{-3}$，冬季浓度最高，夏季浓度最低，主要来源包括石化工业排放、燃煤排放及机动车尾气排放等。胡锋等[22]观测得到伊宁市城区和郊区$PM_{2.5}$中PAHs浓度分别为16.70 $ng\cdot m^{-3}$和14.60 $ng\cdot m^{-3}$，主要来自汽车尾气排放。黄菊[9]观测得到乌鲁木齐市$PM_{2.5}$中重金属浓度较高，尤其是Cu和Zn浓度最高，分别为184 $ng\cdot m^{-3}$和163 $ng\cdot m^{-3}$；吉木乃县和富蕴县由于燃煤排放$PM_{2.5}$中PAHs浓度较高，分别为43.32 $ng\cdot m^{-3}$和52.17 $ng\cdot m^{-3}$。

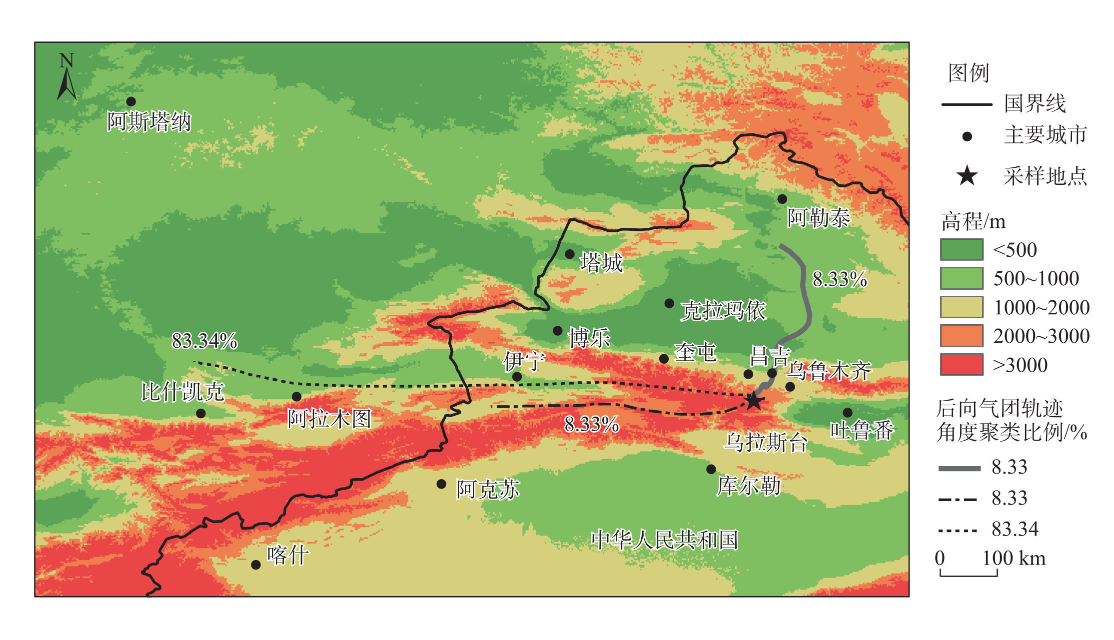
上述工作虽然对于新疆$PM_{2.5}$的特征和来源进行了大量研究，但大多着眼于城市，对非城市地区$PM_{2.5}$的研究较少；另一方面，对$PM_{2.5}$中重金属和PAHs的研究大多是独立的，将二者结合起来共同讨论的研究较少。中天山地区海拔高，是新疆降水量的高值区[23]，离城市较远，受人为活动直接影响较小，大气环境与城市不同。本研究于夏秋季在中天山北麓采集了$PM_{2.5}$样品，对其中的重金属和PAHs污染特征和污染源进行了分析，并尝试将二者结合起来初步讨论可能存在的联系和共同来源，以期更全面地了解新疆大气污染情况和对人体健康的风险，为制定有效的大气污染防控措施提供依据。

1 材料与方法

1.1 样品采集

采样地点为中天山草地生态系统监测站(43.47°N、87.20°E，海拔2169 m)，位于新疆维吾尔自治区乌鲁木齐市乌鲁木齐县白杨沟乌拉斯台地区，距离乌鲁木齐市区约50 km(图1)。采样时间为2019年7月27日—9月26日，其中9月10日由于雨夹雪过程的影响未进行采样；每个样品连续采集23.5 h(当日18:00持续至次日17:30)，共采集样品61份。

采样使用中流量大气颗粒物采样器(武汉天虹TH-150C)并配有切割头(D_{50}=2.5±0.2 μm)，采样流速100 $L\cdot min^{-1}$。采样滤膜为石英纤维滤膜(直径Φ=



注：基于自然资源部标准地图服务网站审图号为GS(2023)2767号的标准地图制作，底图边界无修改。

图1 采样地点与采样期间大气后向轨迹

Fig. 1 Location of sampling sites and atmospheric backward trajectory

90 mm)，采样前在800 ℃下烘烤2 h以去除吸附的有机化合物。采样后收集滤膜，将有颗粒物的一面折叠起来，用锡纸封装后放入冰箱内以-20 ℃低温保存。

1.2 样品分析

1.2.1 重金属分析 参考Zhang等[24]的方法，将滤膜打孔取样放入试管，加入5 mL 65% HNO_3(优级纯)与3 mL 30% H_2O_2(优级纯)，室温下静置16 h。使用微波消解仪(Preekem TOPEX)加热消解，温度梯度设置为：80 ℃保持2 min、120 ℃保持3 min、150 ℃保持3 min、180 ℃保持5 min、200 ℃保持5 min。消解结束后放置1 h冷却，打开试管盖放入赶酸器(Preekem G-400)在160 ℃下加热1 h进行赶酸。赶酸后将溶液倒入洁净试管中加入1% HNO_3定容至15 mL，使用聚醚砜水相针式过滤器(SCAA-101，13 mm×0.45 μm)过滤提取10 mL溶液用于测定。重金属离子分析使用电感耦合等离子体质谱仪(Agilent 7850 ICP-MS)，在He池碰撞模式下测定了14种元素的浓度。

检测元素与检测限为：钒(V，4.92×10^{-3} ppb)、铬(Cr，4.50×10^{-2} ppb)、锰(Mn，9.86×10^{-2} ppb)、铁(Fe，6.40×10^{-2} ppb)、钴(Co，1.73×10^{-3} ppb)、镍(Ni，4.22×10^{-2} ppb)、铜(Cu，7.42×10^{-2} ppb)、锌(Zn，3.80×10^{-2} ppb)、砷(As，4.02×10^{-3} ppb)、硒(Se，3.57×10^{-2} ppb)、铷(Rb，3.22×10^{-2} ppb)、镉(Cd，1.34×10^{-3} ppb)、铊(Tl，3.29×10^{-3} ppb)、铅(Pb，4.15×10^{-2} ppb)。

1.2.2 PAHs分析 参考Santos等[25]的方法，萃取用非针式滤器(Whatman Mini-UniPrep)，一端有孔径0.2 μm的聚四氟乙烯滤膜；萃取剂采用含18%乙腈的二氯甲烷液态混合物。将滤膜切下小块放入装有500 μL萃取剂的滤器腔室中，再将滤器用台式超声波清洗机(昆山舒美KQ5200)超声提取23 min，最后放入手动压缩机(Whatman Mini-UniPrep G2)加压过滤提取液。用混合标准溶液(百灵威科技)作为标准工作曲线，将5种氘化PAHs混合标准溶液(NaP-d8、Ace-d10、Phe-d10、Chr-d12和Per-d12)稀释至10 mg·L^{-1}，取0.5 μL加入样品作为定量内标。PAHs分析使用气-质联用仪(GC-MS，Agilent 7890-5975)，选用色谱柱为HP-5MS(30 m×0.25 mm×0.25 μm)，载气为高纯度He(纯度>99.999%，流量1 L·min^{-1})。

检测组分与检测限为：萘(Nap，1.59×10^{-3} ppb)、苊(Ace，1.63×10^{-3} ppb)、苊烯(Acy，1.41×10^{-3} ppb)、芴(Flu，1.48×10^{-3} ppb)、菲(Phe，2.57×10^{-3} ppb)、蒽(Ant，3.92×10^{-3} ppb)、荧蒽(Flua，1.15×10^{-3} ppb)、芘(Pyr，8.98×10^{-4} ppb)、苯并[a]蒽(BaA，2.92×10^{-3} ppb)、䓛(Chr，2.24×10^{-3} ppb)、苯并[b]荧蒽(BbF，1.02×10^{-2} ppb)、苯并[k]荧蒽(BkF，1.44×10^{-2} ppb)、苯并[a]芘(BaP，2.87×10^{-2} ppb)、苯并[e]芘(BeP，9.80×10^{-3} ppb)、茚并[1,2,3-cd]芘(IcdP，1.25×10^{-2} ppb)、苯并[ghi]苝(BghiP，9.77×10^{-3} ppb)、二苯并[a,h]蒽(DahA，1.58×10^{-2} ppb)、晕苯(Cor，1.75×10^{-2} ppb)。NaP空白污染较高，Acy和Ace浓度低于检测限，本研究不考虑这3种PAHs。

1.3 气象要素及后向轨迹分析

气象要素数据包括气温、相对湿度、风速和降水量等，来源于距采样点约1 km的乌鲁木齐市草地气象试验站，时间分辨率为1 h。本研究对气象要素求采样时间段内平均值后再计算其与重金属和PAHs浓度之间的Pearson相关系数并进行显著性检验，以分析相关性。

本研究使用MeteoInfo软件，基于混合单粒子拉格朗日积分轨迹(HYSPLIT)分布模型对后向气团轨迹进行角度距离聚类分析[26]。模型数据来自NCEP GDAS数据集。模型高度500 m，此高度能准确反映边界层平均流场特征[27]。计算采样期间每日00:00、06:00、12:00、18:00 4个时次到达采样点的48 h气团后向轨迹后，再进行聚类分析。

1.4 来源解析研究方法

1.4.1 富集因子 富集因子(EF)通过比较元素在背景环境中的含量与其在特定样品中的实际含量来判断人类活动的影响程度，广泛应用于重金属的溯源研究中[28]。计算方法为：

$$EF=\frac{\left(C_{inv}/C_{ref}\right)_{样品}}{\left(C_{inv}/C_{ref}\right)_{土壤背景}} \tag{1}$$

式中：C_{inv}和C_{ref}分别为研究元素和参照元素的浓度(ng·m^{-3})；$\left(C_{inv}/C_{ref}\right)_{样品}$和$\left(C_{inv}/C_{ref}\right)_{土壤背景}$分别为研究元素和参照元素在研究样品中和土壤背景中浓度之比。一般将10作为$PM_{2.5}$中重金属自然源与人为源的分界线，EF<10说明元素主要来自于自然源，EF>10说明逐渐受人为源的影响，EF值越大，人为源贡献越多。参照元素应当选取在环境背景中比较稳定的元素，本研究选取变异系数小的Mn。背景值取《中国土壤元素背景值》中新疆A层土壤元素

背景值[29],其中缺少的Se数据取西北地区土地质量地球化学调查项目数据[30]。

1.4.2 PAHs特征比值法 不同污染源排放的PAHs组分和浓度不同,计算PAHs不同组分浓度的比值是一种简便快速分析污染源的方法。本研究计算了4种PAHs比值,不同比值代表的污染源如表1所示[31-32]。

1.4.3 PMF模型 本研究使用EPA PMF 5.0软件基于正矩阵因子分析(PMF)模型进行污染源解析。PMF模型将源数据分解为源谱分布矩阵和源贡献矩阵,指定污染源个数后使用权重计算不同成分的误差,以最小二乘法确定污染源的相对贡献,再根据源谱分布的数据判断源的类型[33]。其计算的基本原理为:

$$X_{ij} = \sum_{k=1}^{P} G_{ik} F_{kj} + E_{ij} \quad (2)$$

式中:X_{ij}为第i个样品中物质j的浓度(ng·m^{-3});G_{ik}为第i个样品中特征因子k的浓度(ng·m^{-3});F_{kj}为物质k中物质j的浓度(ng·m^{-3});E_{ij}为第i个样品中物质j的残留因子(ng·m^{-3});P为污染源的总数目。PMF计算的主要目标是求出目标函数Q,使得计算值尽可能地接近于理论值,表达式为:

$$Q = \sum_{i=1}^{m} \sum_{j=1}^{n} \left(\frac{E_{ij}}{U_{ij}} \right) \quad (3)$$

式中:U_{ij}为第i个样品中物质j的不确定度。

1.5 健康风险评价方法

本研究根据USEPA推荐的人体健康风险评估模型[34],结合《区域环境污染健康风险评估技术导则》[35],采用基于吸入慢性暴露浓度(EC,μg·m^{-3})的改进算法,计算经呼吸道途径直接吸入$PM_{2.5}$后重金属和PAHs造成的致癌和非致癌风险。EC的计算公式为:

$$EC = \frac{C_{air} \times ET \times EF \times ED}{AT} \quad (4)$$

式中:C_{air}为空气中污染物浓度(μg·m^{-3});ET为暴露时间(h·d^{-1});EF为暴露频率(d·a^{-1});ED为暴露年限(a);AT为平均暴露时间(h)。不同人群健康风险暴露参数如表2所示[36]。

污染物的非致癌健康风险通过无量纲数危害商(HQ)评估,计算方法为:

$$HQ = \frac{EC}{Rfc \times 1000} \quad (5)$$

式中:Rfc为污染物暴露的呼吸吸入参考浓度(mg·m^{-3})。一般认为HQ≤1时健康风险较小,HQ>1时存在非致癌健康风险,值越大健康风险越高。存在多种污染物时总的健康风险通过非致癌危害指数(HI)评估,它是各污染物HQ之和:

$$HI = \sum HQ \quad (6)$$

污染物的致癌风险通过无量纲数终生超额致癌风险度(ECR)评估,计算公式为:

$$ECR = EC \times IUR \quad (7)$$

式中:IUR为吸入单位污染物的癌症风险因子[(μg·m^{-3})$^{-1}$]。污染物ECR<10^{-6}时,不存在显著的致癌风险;10^{-6}<ECR<10^{-4}时,存在一定的致癌风险;ECR>10^{-4}时,存在严重的致癌风险。

存在健康风险的重金属元素Rfc与IUR值如表3所示[37]。六价形态Cr按总浓度的1/7换算。

各PAHs单体的毒性不同,BaP是毒性最强、最具代表性的单体(Rfc和IUR分别为2×10^{-6}和6×10^{-4}),因此引入无量纲数PAHs各单体相对BaP的毒性等效因子(TEF),将其他单体浓度换算为BaP等价浓度来计算各PAHs单体的健康风险,再将求和得到总毒性当量浓度(TEQ)[38]:

$$TQE = \sum C \times TEF \quad (8)$$

式中:C为PAHs单体质量浓度(ng·m^{-3});TEF为对应

表1 不同来源对应的PAHs特征比值

Tab. 1 Characteristic ratios of PAHs corresponding to different sources

特征化合物比	石油源	石油源或燃烧源	燃烧源		非机动车源	机动车源
			液态化石燃料	煤炭与生物质		
Ant/(Ant+Phe)	<0.10	–	>0.10	>0.10	–	–
BaA/(BaA+Chr)	<0.20	0.20~0.35	>0.35	>0.35	–	–
IcdP/(IcdP+BghiP)	<0.20	–	0.20~0.50	>0.50	–	–
BaP/BghiP	–	–	–	–	<0.6	>0.6

注:Ant为蒽;Phe为菲;BaA为苯并[a]蒽;Chr为䓛;IcdP为茚并[1,2,3-cd]芘;BghiP为苯并[ghi]苝;BaP为苯并[a]芘。

表2 不同人群健康风险暴露参数取值

Tab. 2 Value of health risk exposure parameters of different populations

暴露参数	不同人群	
	成人	儿童
ET/h·d^{-1}	8	6
EF/d·a^{-1}	180	180
ED/a	24	6
AT(致癌)/h	70×365×24	70×365×24
AT(非致癌)/h	ED×365×24	ED×365×24

注:ET为暴露时间;EF为暴露频率;ED为暴露年限;AT为平均暴露时间。

表3 重金属元素的Rfc与IUR值

Tab. 3 Concentration values of Rfc and IUR of heavy metals

元素	Rfc/mg·m^{-3}	IUR/(μg·m^{-3})$^{-1}$
钒(V)	1.0×10^{-4}	–
六价铬(Cr(Ⅵ))	1.0×10^{-4}	8.4×10^{-2}
锰(Mn)	5.0×10^{-5}	–
钴(Co)	6.0×10^{-6}	9.0×10^{-3}
镍(Ni)	9.0×10^{-5}	2.6×10^{-4}
砷(As)	1.5×10^{-5}	4.3×10^{-3}
硒(Se)	–	2.0×10^{-2}
镉(Cd)	1.0×10^{-5}	1.8×10^{-3}
铅(Pb)	–	8.0×10^{-5}

注:Rfc为吸入参考浓度;IUR为吸入单位风险因子。

毒性等效因子,Flu、Phe、Flua、Pyr、Cor为0.001,Ant、Chr、BeP、BghiP为0.01,BaA、BbF、BkF、IcdP为0.1,DahA为1。

2 结果与分析

2.1 重金属的浓度特征与富集因子

中天山$PM_{2.5}$中14种重金属元素的浓度水平如表4所示,总平均浓度为238.50 ng·m^{-3}。各元素平均浓度水平为Fe>Cu>Zn>Pb>Mn>Cr>As>V>Rb>Ni>Co>Se>Cd>Tl。不同元素的平均浓度差异较大,Fe(139.90 ng·m^{-3})和Cu(78.72 ng·m^{-3})远高于其他元素,此外平均浓度较高的是Zn(6.43 ng·m^{-3})、Pb(4.82 ng·m^{-3})、Mn(4.53 ng·m^{-3})和Cr(1.78 ng·m^{-3}),其余元素平均浓度均低于1 ng·m^{-3}。在《环境空气质量标准》规定限值的Pb、As、Cd和Cr 4种元素中[39],只有Cr的平均浓度高于限值。Mn、As、Tl、Pb的变异系数较小,浓度波动较小,Cr、V、Co、Zn的变异系数较大,浓度波动大。其他地区与中天山相比(表5),$PM_{2.5}$中大多数重金属的浓度,尤其是Pb、As等元素的浓度都显著更高;中天山$PM_{2.5}$中大部分重金属元素浓度处于较低水平,尤其是Zn、As、Pb的浓度远低于中国其他地点,只有Cu的浓度相对较高。

表4 中天山$PM_{2.5}$中重金属浓度水平

Tab. 4 Concentration of heavy metals in $PM_{2.5}$ in middle Tianshan Mountains

元素	最小值/ng·m^{-3}	最大值/ng·m^{-3}	均值/ng·m^{-3}	变异系数
钒(V)	n.d.	15.82	0.42	4.81
铬(Cr)	n.d.	86.69	1.78	6.20
锰(Mn)	n.d.	20.43	4.53	0.84
铁(Fe)	9.61	1776.13	139.90	1.75
钴(Co)	n.d.	3.69	0.22	2.58
镍(Ni)	n.d.	2.06	0.27	1.89
铜(Cu)	2.07	496.63	78.72	1.20
锌(Zn)	n.d.	91.25	6.43	2.02
砷(As)	0.06	2.65	0.79	0.80
硒(Se)	n.d.	0.67	0.13	1.27
铷(Rb)	n.d.	1.93	0.32	1.32
镉(Cd)	0.02	0.86	0.10	1.12
铊(Tl)	0.01	0.21	0.07	0.60
铅(Pb)	0.52	14.35	4.82	0.52

注:n.d.表示未检出。下同。

表5 中国$PM_{2.5}$中重金属平均浓度对比

Tab. 5 Comparison of average concentrations of heavy metals in $PM_{2.5}$ in China /ng·m^{-3}

采样地点	采样时间(年-月)	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Pb	来源
贡嘎山	2015-05—2016-05	22.74	9.06	379.79	97.75	7.23	441.65	1.22	0.29	44.39	[40]
南京市	2016-12—2017-10	32.1	38.0	690.5	42.4	28.0	220.5	6.2	1.6	38.4	[41]
济南市	2017-03	0.1	18.0	–	5.5	225.0	71.8	4.0	0.6	35.3	[42]
乌鲁木齐市	2018-03—2018-04	112	72	–	26	184	263	–	26	47	[9]
克拉玛依市	2018-03—2018-04	91	45	–	21	69	61	–	15	42	[9]
西安市	2019-01—2019-12	14	355	686	–	74	18	21	224	144	[43]
乌鲁木齐市	2019-10、2019-12	–	71.09	2086.19	19.74	175.69	330.92	180.93	–	53.80	[21]
中天山	2019-07—2019-09	1.78	4.53	139.90	0.27	78.72	6.43	0.79	0.10	4.82	本研究

2.2 PAHs的浓度特征

中天山$PM_{2.5}$中15种PAHs的浓度水平如表6所示。PAHs总浓度为1.37 ng·m^{-3}。平均浓度最高的是BbF(0.23 ng·m^{-3}),IcdP(0.16 ng·m^{-3})、Flua(0.14 ng·m^{-3})和Chr(0.13 ng·m^{-3})的浓度也高于0.1 ng·m^{-3}。BaP的平均浓度为0.10 ng·m^{-3},最高为0.47 ng·m^{-3},远低于《环境空气质量标准》的限值[39]。Flu平均浓度最低,也是唯一低于0.01 ng·m^{-3}的组分。苯环环数不同的PAH性质也不同,2~3环PAHs易挥发为气态,4环以上PAHs挥发性低,存留时间更长[44-45]。各环数PAHs占比为:5~7环(34.79%~83.56%,平均64.07%)>4环(14.77%~55.72%,平均32.34%)>3环(0.97%~10.61%,平均3.59%),这一比例和它们的挥发速度一致。其他地区与中天山相比(表7),$PM_{2.5}$中PAHs浓度都高于中天山,多数地点不同环数PAHs比例也和中天山存在差异,4环以下PAHs占比显著更高;中天山$PM_{2.5}$中PAHs浓度总体处于较低水平,但5~7环PAHs占比相对较高。

表6 中天山$PM_{2.5}$中PAHs浓度水平

Tab. 6 Concentration of PAHs in $PM_{2.5}$ in middle Tianshan Mountains

PAHs	最小值/ng·m^{-3}	最大值/ng·m^{-3}	均值/ng·m^{-3}	变异系数	环数
芴(Flu)	n.d.	0.03	0.003	1.57	3
菲(Phe)	0.003	0.19	0.03	0.99	3
蒽(Ant)	n.d.	0.03	0.01	0.50	3
荧蒽(Flua)	0.01	0.78	0.14	0.95	4
芘(Pyr)	0.01	0.56	0.12	0.90	4
苯并[a]蒽(BaA)	0.004	0.30	0.05	0.96	4
䓛(Chr)	0.02	0.47	0.13	0.69	4
苯并[b]荧蒽(BbF)	0.04	0.87	0.23	0.62	5
苯并[k]荧蒽(BkF)	0.02	0.54	0.12	0.70	5
苯并[e]芘(BeP)	0.02	0.35	0.10	0.63	5
苯并[a]芘(BaP)	n.d.	0.47	0.10	0.89	5
二苯并[a,h]蒽(DahA)	n.d.	0.11	0.02	0.81	5
茚并[1,2,3-cd]芘(IcdP)	0.03	0.78	0.16	0.84	6
苯并[ghi]苝(BghiP)	0.02	0.48	0.10	0.83	6
晕苯(Cor)	n.d.	0.27	0.05	0.92	7

2.3 气象要素与后向轨迹分析

根据采样期间气温、相对湿度、降水量、风速和风向5项气象要素数据(图2),计算得到其中4项气象要素与重金属和PAHs各组分浓度的相关性(图3)。部分重金属与相对湿度呈负相关,与降水量呈正相关;PAHs与相对湿度呈负相关,与风速呈正相关,部分5~7环PAHs与气温呈正相关。

采样期间降水多发生在傍晚至夜间,此时本身就是污染排放和输送较少的时段[49],降水没有显示出明显的清除作用可能与此有关。PAHs与相对湿度的负相关关系可能与湿沉降过程有关,气相PAHs可随着大气中液滴的凝结过程溶解其中造成浓度的大幅减少,继而导致颗粒相PAHs通过气粒分配向气相转化,颗粒相PAHs浓度同样减少[50]。部分PAHs与气温和风速呈正相关可能与山谷风输送和边界层引起的扩散相关,日间山区更高的气温使得山风更强,有利于污染物从低海拔城区向高海拔山区的输送,同时在高温下大气边界层厚,污染物更易向上扩散,但低环PAHs在气温升高的同时也更容易转化为气态,而5~7环PAHs在颗粒相保留更多,更易表现出正相关[51-52]。

表7 中国$PM_{2.5}$中PAHs平均浓度对比

Tab. 7 Comparison of average concentrations of PAHs in $PM_{2.5}$ in China

采样地点	采样时间(年-月)	2~3环PAHs		4环PAHs		5~7环PAHs		总浓度/ng·m^{-3}	来源
		浓度/ng·m^{-3}	占比/%	浓度/ng·m^{-3}	占比/%	浓度/ng·m^{-3}	占比/%		
西安市	2016-01—2018-12	0.44	3.77	3.98	34.08	6.85	58.65	11.27	[46]
银川市	2016-07	19.08	42.62	11.81	26.38	13.88	31.00	44.77	[47]
乌鲁木齐市	2018-03—2018-04	5.75	21.39	13.83	51.45	7.30	27.16	26.88	[9]
克拉玛依市	2018-03—2018-04	4.62	17.30	20.41	76.41	1.68	6.29	26.71	[9]
吉木乃县	2018-03—2018-04	6.70	15.47	31.36	72.39	5.26	12.14	43.32	[9]
伊宁市	2016-06—2016-08	2.95	17.69	3.59	21.52	10.14	60.79	16.68	[22]
瓦里关站	2019-12—2020-01	0.41	4.81	4.60	53.93	3.52	41.27	8.53	[48]
金沙站	2019-12—2020-01	0.22	7.83	1.14	40.57	1.45	51.60	2.81	[48]
中天山	2019-07—2019-09	0.05	3.59	0.44	32.34	0.83	64.07	1.37	本研究

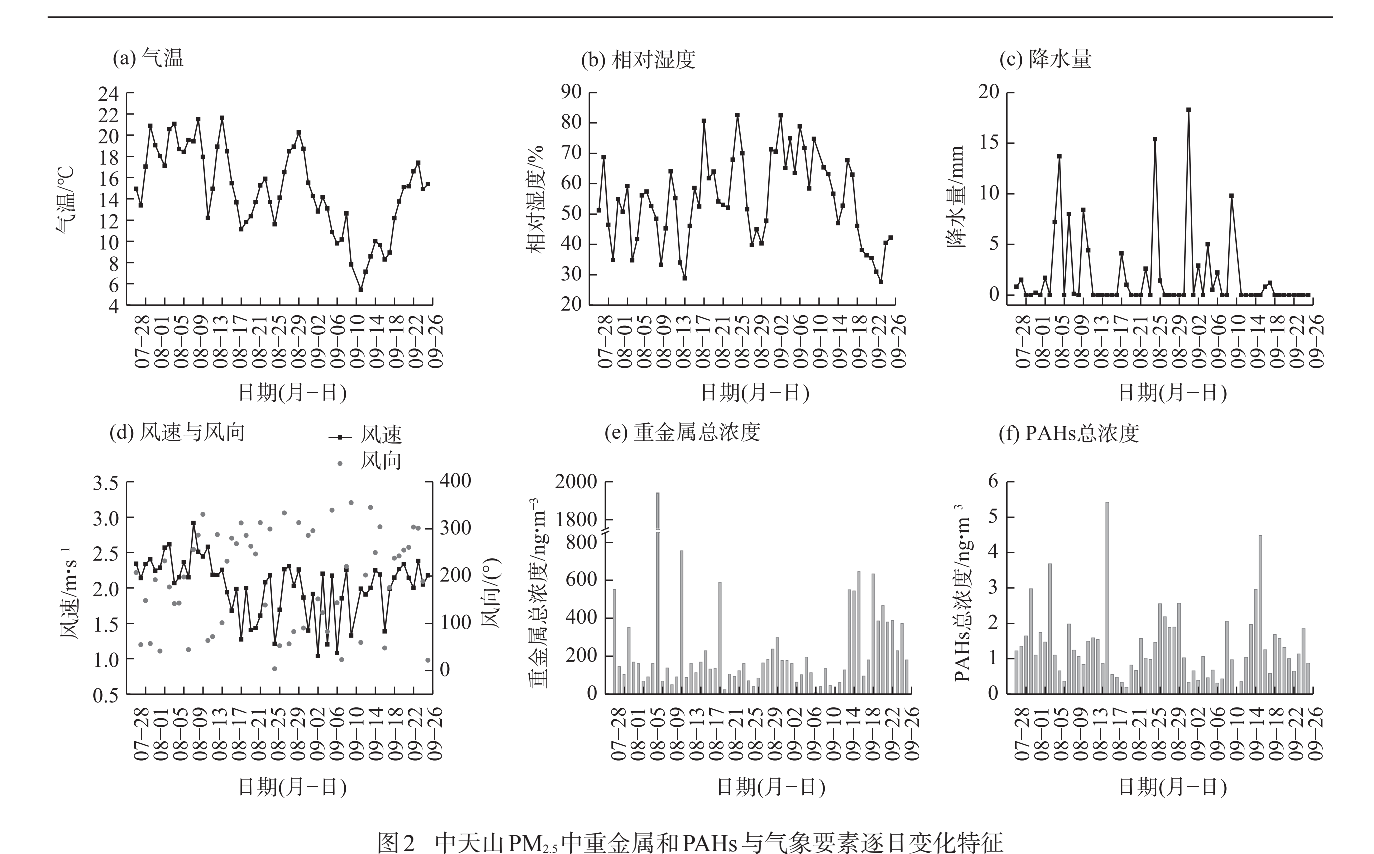
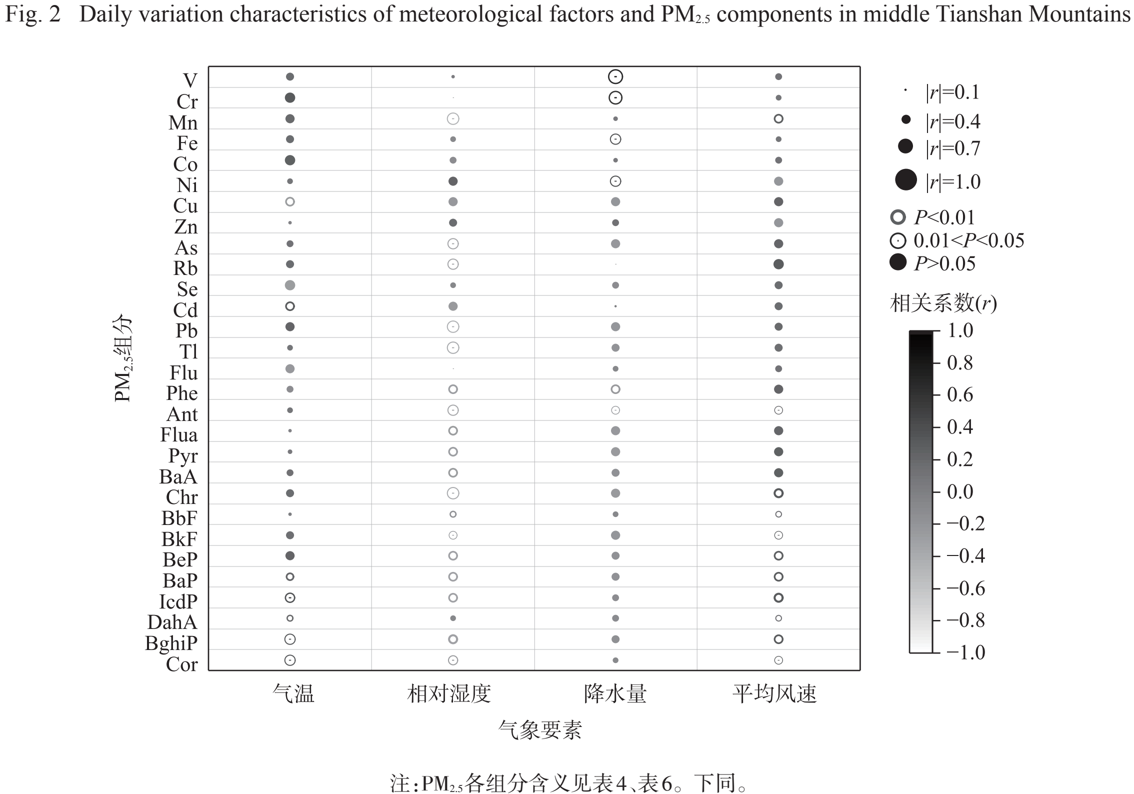


图2　中天山$PM_{2.5}$中重金属和PAHs与气象要素逐日变化特征

Fig. 2　Daily variation characteristics of meteorological factors and $PM_{2.5}$ components in middle Tianshan Mountains



注：$PM_{2.5}$各组分含义见表4、表6。下同。

图3　中天山$PM_{2.5}$中重金属和PAHs与气象要素相关系数

Fig. 3　Correlation coefficient between meteorological elements and $PM_{2.5}$ components in middle Tianshan Mountains

此外，根据采样期间对应的16方位风向，总重金属浓度的高值更多出现在西西南风、西北风和北西北风期间，部分浓度较高的元素中Cu高值风向与总重金属高值风向相对一致，Fe和Zn的高值主要出现在西北风和北西北风期间，Pb的高值主要出现在北西北风、东东北风和东风期间；PAHs浓度的高值

则更多出现在西西南风、西北风和东北风期间，其中3环PAHs高值主要出现在东东北风和东风期间，4环PAHs高值主要出现在东东北风、北风和西西北风期间，5~7环PAHs高值主要出现在东风、西北风和西西南风期间。

采样点在采集期间的后向轨迹及其聚类分析结果如图1所示。中天山$PM_{2.5}$主要受到来自西部和北部气团输送的影响。来自北部较短的气团轨迹仅占8.33%，但经过离采样点最近的城市乌鲁木齐市，可能对$PM_{2.5}$的组分和浓度产生较大的影响。来自西部的气团轨迹中，短途传输的占8.33%，主要途经天山山区；长途传输的占83.34%，受到来自伊宁市等城市的污染排放影响。

综合后向轨迹与风向，3条来自不同方向与距离的气团轨迹都对$PM_{2.5}$中重金属和PAHs有输送作用，但对不同组分的贡献也并不一致。重金属元素中，3条气团轨迹都会输送较多的Cu，因此Cu浓度较高；也有部分元素如Pb主要来自乌鲁木齐的短途输送。不同环数PAHs的来源也有差异，3环以下PAHs在长途输送中更容易转化为气态或与OH自由基等物质反应被消除[53]，因此中天山3环以下PAHs主要来自乌鲁木齐市的短途输送且浓度较低；4环以上PAHs则更加稳定，可以通过西部的长途输送到达中天山。

2.4 污染物的来源解析

2.4.1 富集因子 各元素的平均EF值如图4所示。Cu、Zn、As、Se、Tl、Pb 6种元素富集程度较高，平均

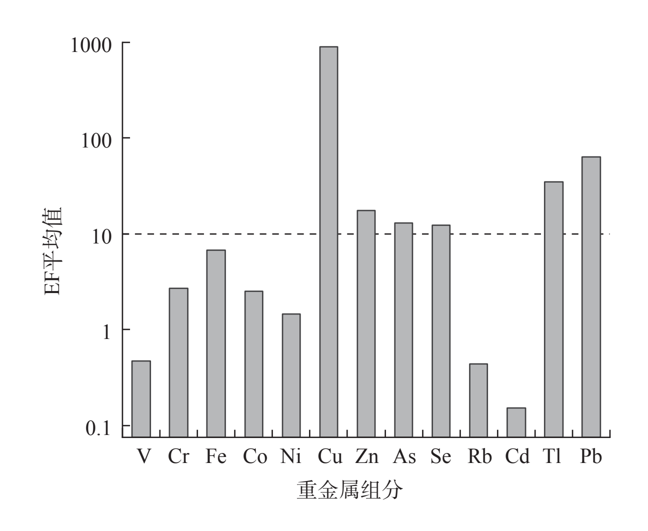


图4 中天山$PM_{2.5}$中重金属富集因子(EF)平均值

Fig. 4 Average enrichment factors of heavy metals in $PM_{2.5}$ in middle Tianshan Mountains

EF值大于10。富集程度最高的是Cu，平均EF值为896.27，表明人为活动排放了大量的Cu。Pb和Tl的平均EF值分别为63.69和35.03，所有样品中EF值大于10的占比分别为96.72%和86.89%，表明二者也是人为源居多。As、Zn和Se的平均EF值分别为17.51、13.09和12.29，但EF值大于10的样品占比As为50.82%，Zn和Se都在40%左右，表明人为活动有一定程度贡献，但并非完全决定性的。Cr、Co、Ni、Fe的平均EF值低于10，但也有部分样品EF值大于10，表明人为活动的影响较小但仍然存在。

2.4.2 PAHs特征比值 4种PAHs比值如图5所示。Ant/(Ant+Phe)的平均值为0.28，只有6个样品的值小于0.1，显示大部分样品可能受燃烧源的影响为主；BaA/(BaA+Chr)的平均值为0.27，多数样品的值在0.20~0.35之间，显示出石油源与燃烧源的混合影响；综合2种比值，石油源和燃烧源共存，燃烧源占主导地位。IcdP/(IcdP+BghiP)的平均值为0.61，所有样品的比值均大于0.5，显示煤炭与生物质燃烧源的影响较大；Bap/BghiP的平均值为0.91，多数样品的值大于0.6，显示大部分样品受到机动车排放源的影响；综合2种比值，煤炭与生物质燃烧和液态化石燃料燃烧对PAHs的影响同时存在。由此可见，PAHs有多样的来源，以包括煤炭与生物质和液态化石燃料的燃烧源为主，石油源也存在一定的影响。

2.4.3 PMF源解析 通过PMF源解析分析得到重金属和PAHs的5个贡献因子(图6)。

因子1总贡献为14.32%，对部分重金属元素贡献较高，最高的Co为89.70%，其次是Ni(54.98%)、Rb(41.19%)和Cd(34.34%)；对PAHs贡献较少，最高的DahA为7.17%，其余普遍在5%以下。有色金属开采和冶炼过程中会排放大量Co、Ni和Cd[54]，可以认为因子1是冶炼源。

因子2总贡献为12.52%，在重金属元素中对Se贡献达到90.01%，对Mn、Zn、As、Cr、Fe等元素也都有20%~30%的贡献；在PAHs中对Phe、Pyr、Flua、Chr等4环PAHs有10%以上的贡献。新疆富硒土壤面积广阔，乌鲁木齐市是富硒农田较为集中的地区[30]，Se来自农田土壤的可能性较大，且Phe和Chr都是农田和道路浮土、建筑垃圾粉尘等扬尘的示踪剂[14]，因此可以认为因子2是扬尘源。

因子3总贡献为16.14%，在重金属元素中只对

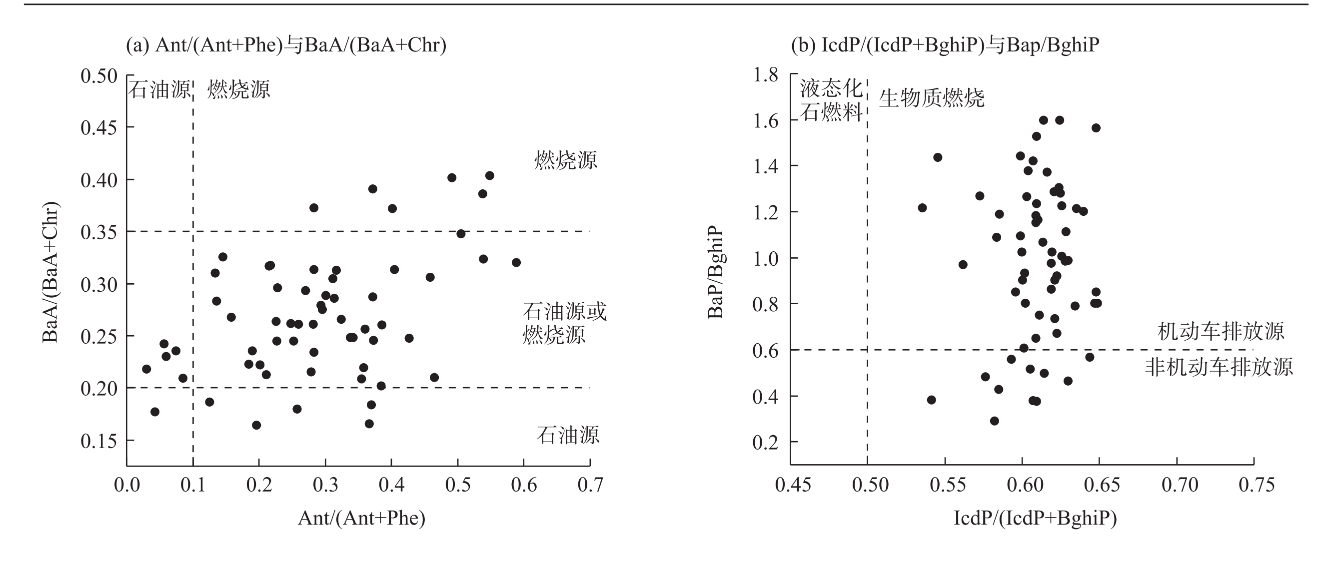


图5 中天山$PM_{2.5}$中PAHs特征比值

Fig. 5 Characteristic rations of PAHs in $PM_{2.5}$ in middle Tianshan Mountains

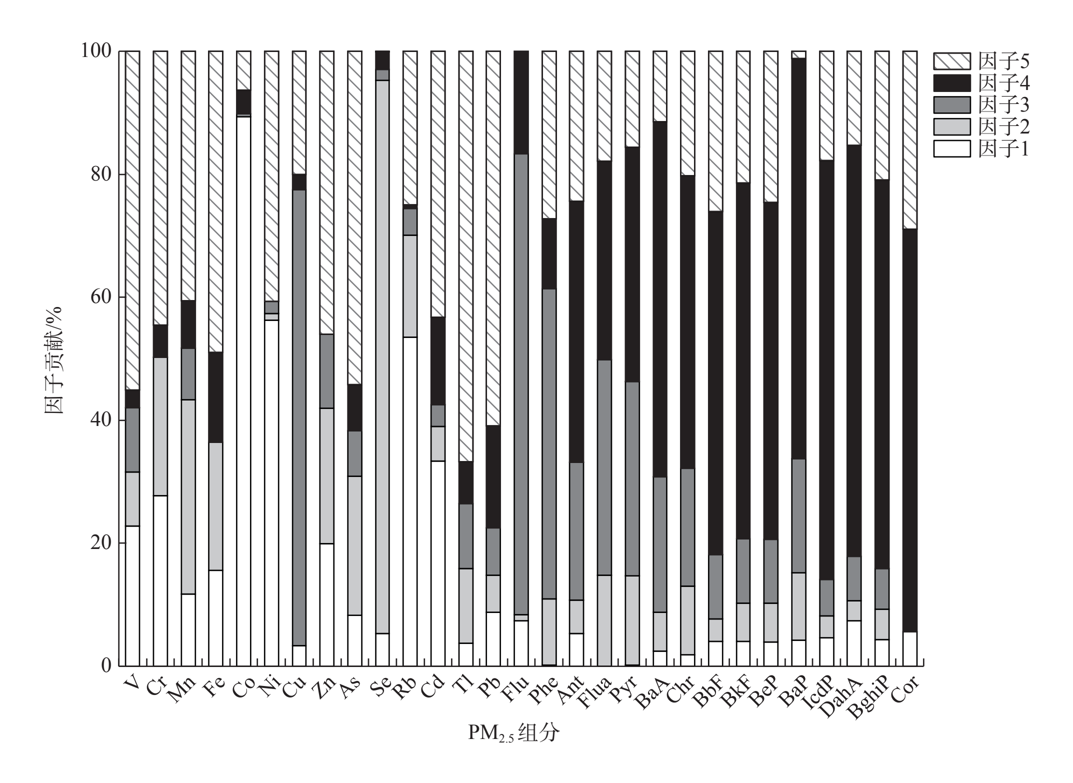


图6 正矩阵因子分析(PMF)源解析因子比例

Fig. 6 Ratio of PMF source resolution factors

Cu的贡献较多，达到74.22%，对其他重金属元素的贡献多数在10%之下；对PAHs的贡献以3环PAHs居多，对Flu的贡献达74.95%，而对5~7环PAHs的贡献在10%以下。3环PAHs的来源与生物质燃烧有关，如Flu是典型的农业垃圾焚烧标志物，炼焦等工业生产过程也会有一定的贡献[55]；Cu与多种工业生产过程相关[42]，因此可以认为因子3是生物质燃烧与工业混合源。

因子4总贡献为28.56%，对BaA、BkF、BeP和BaP等PAHs有50%以上的贡献，但对重金属的贡献极少。Pyr和BaA是典型的天然气示踪剂，BaP和BkF是工业石油的化学标记物[56]，因此因子4可能是天然气燃烧和石油化工的混合源。

因子5总贡献为28.46%，对多种重金属如V

(55.07%)、As(54.21%)、Tl(66.73%)、Pb(60.95%)都有显著的贡献,对PAHs也大多有20%左右的贡献,说明可能包含多重来源。As是燃煤源的代表性元素,V和Pb是典型的机动车排放标志物[18],因此可以认为因子5是机动车排放与燃煤混合源。

总体来看,重金属和PAHs存在部分共同来源,其中被识别为机动车排放与燃煤混合源的因子5对重金属有39.45%的贡献,对PAHs有18.20%的贡献,是二者最重要的共同来源;个别组分存在更高比例的相同来源,如被识别为生物质燃烧与工业混合源的因子3对Cu有74.22%的贡献,对3环PAHs有49.30%的贡献。

2.5 健康风险评价

重金属元素和PAHs的健康风险如表8所示。所有重金属元素和PAHs的HI值(总HQ值)对成人和儿童都低于1,非致癌健康风险较小;但总ECR值对成人和儿童都超过了10^{-6},存在一定致癌风险,成人风险更大。重金属元素的总HQ值对成人为0.328,对儿童为0.246,都低于1,非致癌健康风险较小;单个元素只有Mn的HQ值略高于0.1,其余元素均低于0.1。重金属元素的ECR成人总值为1.69×10^{-5},儿童为3.17×10^{-6},说明存在一定的致癌风险,成人的风险更高;单个元素中Cr、Co、As、Se对成人存在一定的致癌风险,但除过Cr外其余元素的ECR值都只稍高于10^{-6}的风险界限;Cr对儿童也有一定的致癌风险。PAHs的健康风险低于重金属,HQ成人总值为0.148,儿童为0.111,ECR成人总值为6.08×10^{-8},儿童为1.14×10^{-8},均低于风险值。

表8 重金属元素与PAHs的危害商(HQ)与致癌超额危险度(ECR)

Tab. 8 HQ and ECR for heavy metals and PAHs

污染物	HQ		ECR	
	成年人	儿童	成年人	儿童
V	6.90×10^{-3}	5.18×10^{-3}	–	–
Cr	4.18×10^{-8}	3.14×10^{-3}	1.20×10^{-5}	2.26×10^{-6}
Mn	0.149	0.112	–	–
Co	6.03×10^{-2}	4.52×10^{-2}	1.12×10^{-6}	2.09×10^{-7}
Ni	4.93×10^{-3}	3.70×10^{-3}	3.96×10^{-8}	7.42×10^{-9}
As	8.66×10^{-2}	6.49×10^{-2}	1.91×10^{-6}	3.59×10^{-7}
Se	–	–	1.47×10^{-6}	2.75×10^{-7}
Cd	1.64×10^{-2}	1.23×10^{-2}	1.01×10^{-7}	1.90×10^{-8}
Pb	–	–	2.17×10^{-7}	4.07×10^{-8}
总重金属	0.328	0.246	1.69×10^{-5}	3.17×10^{-6}
Flu	2.47×10^{-6}	1.85×10^{-6}	1.01×10^{-12}	1.90×10^{-13}
Phe	2.47×10^{-5}	1.85×10^{-5}	1.01×10^{-11}	1.90×10^{-12}
Ant	8.22×10^{-5}	6.16×10^{-5}	3.38×10^{-11}	6.34×10^{-12}
Flua	1.15×10^{-4}	8.63×10^{-5}	4.73×10^{-11}	8.88×10^{-12}
Pyr	9.86×10^{-5}	7.40×10^{-5}	4.06×10^{-11}	7.61×10^{-12}
BaA	4.11×10^{-3}	3.08×10^{-3}	1.69×10^{-9}	3.17×10^{-10}
Chr	1.07×10^{-3}	8.01×10^{-4}	4.40×10^{-10}	8.24×10^{-11}
BbF	1.89×10^{-2}	1.42×10^{-2}	7.78×10^{-9}	1.46×10^{-9}
BkF	9.86×10^{-3}	7.40×10^{-3}	4.06×10^{-9}	7.61×10^{-10}
BeP	8.22×10^{-4}	6.16×10^{-4}	3.38×10^{-10}	6.34×10^{-11}
BaP	8.22×10^{-2}	6.16×10^{-2}	3.38×10^{-8}	6.34×10^{-9}
IcdP	1.32×10^{-2}	9.86×10^{-3}	5.41×10^{-9}	1.01×10^{-9}
DahA	1.64×10^{-2}	1.23×10^{-2}	6.76×10^{-9}	1.27×10^{-9}
BghiP	8.22×10^{-4}	6.16×10^{-4}	3.38×10^{-10}	6.34×10^{-11}
Cor	4.11×10^{-5}	3.08×10^{-5}	1.69×10^{-11}	3.17×10^{-12}
总PAHs	0.148	0.111	6.08×10^{-8}	1.14×10^{-8}
总和	0.476	0.357	1.70×10^{-5}	3.18×10^{-6}

3 结论

(1) 中天山夏秋季$PM_{2.5}$中重金属总平均浓度为238.50 ng·m^{-3},Fe(139.90 ng·m^{-3})和Cu(78.72 ng·m^{-3})的平均浓度最高,其他元素的平均浓度均低于10 ng·m^{-3};PAHs总平均浓度为1.37 ng·m^{-3},3环PAHs、4环PAHs和5~7环PAHs的平均浓度占比分别为3.59%、32.34%和64.07%。重金属和PAHs浓度相比其他地区显著更低,只有Cu浓度相对较高。

(2) 采样期间的后向气团轨迹中来自北部的短距离输送占8.33%,来自西部的短距离输送占8.33%,来自西部的长距离输送占83.34%,经过乌鲁木齐市和伊宁市的气团可能对中天山$PM_{2.5}$影响较大。气温、湿度和风速等气象要素与$PM_{2.5}$中重金属和PAHs浓度变化相关,可能通过改变PAHs的气粒转化过程以及山谷风、边界层等输送方式产生影响。

(3) 重金属和PAHs有人为源和自然源等多种不同的来源,其中各PAHs单体有相对一致的来源。使用PMF源解析得到污染源主要包括天然气燃烧与石油源(28.56%)、机动车排放和燃煤(28.46%)、生物质燃烧和工业污染(16.14%)、有色金属冶炼(14.32%)和扬尘(12.52%)。机动车排放和燃煤是重金属和PAHs最主要的共同来源。

(4) 计算经呼吸道途径直接吸入$PM_{2.5}$后重金属和PAHs的健康风险,成人和儿童受到的非致癌健

康风险较低，但存在一定致癌风险，成人风险更高；其中Cr、Co、As、Se元素ECR值超过了10^{-6}，是存在一定致癌风险的单体物质，其余重金属元素和PAHs致癌和非致癌健康风险都较低。

参考文献（References）

[1] 曹军骥. 我国$PM_{2.5}$污染现状与控制对策[J]. 地球环境学报, 2012, 3(5): 1030−1036. [Cao Junji. Pollution status and control strategies of $PM_{2.5}$ in China[J]. Journal of Earth Environment, 2012, 3(5): 1030−1036.]

[2] Luan T, Guo X L, Guo L J, et al. Quantifying the relationship between $PM_{2.5}$ concentration, visibility and planetary boundary layer height for long-lasting haze and fog-haze mixed events in Beijing[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018, 18(1): 203−225.

[3] Wang J D, Zhao B, Wang S X, et al. Particulate matter pollution over China and the effects of control policies[J]. Science of the Total Environment, 2017, 584−585: 426−447.

[4] 焦美玲, 韩晶, 曹彦超, 等. 庆阳市空气污染及气象因子影响特征分析[J]. 干旱区地理, 2024, 47(6): 932−941. [Jiao Meiling, Han Jing, Cao Yanchao, et al. Characteristics of air pollution and meteorological factors in Qingyang City[J]. Arid Land Geography, 2024, 47(6): 932−941.]

[5] 杨婧, 郭晓爽, 滕曼, 等. 我国大气细颗粒物中金属污染特征及来源解析研究进展[J]. 环境化学, 2014, 33(9): 1514−1521. [Yang Jing, Guo Xiaoshuang, Teng Man, et al. A review of atmospheric fine particulate matter associated trace metal pollutants in China[J]. Environmental Chemistry, 2014, 33(9): 1514−1521.]

[6] Singh D K, Gupta T. Source apportionment and risk assessment of PM_1 bound trace metals collected during foggy and non-foggy episodes at a representative site in the Indo-Gangetic Plain[J]. Science of the Total Environment, 2016, 550: 80−94.

[7] 张晓茹, 孔少飞, 银燕, 等. 亚青会期间南京大气$PM_{2.5}$中重金属来源及风险[J]. 中国环境科学, 2016, 36(1): 1−11. [Zhang Xiaoru, Kong Shaofei, Yin Yan, et al. Sources and risk assessment of heavy metals in ambient $PM_{2.5}$ during Youth Asian Game period in Nanjing[J]. China Environmental Science, 2016, 36(1): 1−11.]

[8] Pateraki S, Asimakopoulos D N, Maggos T, et al. Chemical characterization, sources and potential health risk of $PM_{2.5}$ and PM_1 pollution across the Greater Athens Area[J]. Chemosphere, 2020, 241: 125026, doi: 10.1016/j.chemosphere.2019.125026.

[9] 黄菊. 西北典型城市大气颗粒物组分污染特征及其健康风险评估[D]. 兰州: 兰州大学, 2021. [Huang Ju. Pollution characteristics and health risk assessment of atmospheric particulate matter in northwest China[D]. Lanzhou: Lanzhou University, 2021.]

[10] 姚馨, 赵义, 安琪, 等. 哈尔滨冬季积雪中多环芳烃同大气污染物的关系及其潜在源区分析[J]. 环境科学学报, 2023, 43(5): 341−352. [Yao Xin, Zhao Yi, An Qi, et al. Relationships between polycyclic aromatic hydrocarbons in snow cover and atmospheric pollutants and their potential source areas in Harbin[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2023, 43(5): 341−352.]

[11] 洪纲, 周静博, 姜建彪, 等. 空气细颗粒物($PM_{2.5}$)的污染特征及其来源解析研究进展[J]. 河北工业科技, 2015, 32(1): 64−71. [Hong Gang, Zhou Jingbo, Jiang Jianbiao, et al. Research progress of characteristics and source apportionment of air fine particle pollution ($PM_{2.5}$)[J]. Hebei Journal of Industrial Science and Technology, 2015, 32(1): 64−71.]

[12] 苏都尔·克热木拉, 伊丽米热·阿布达力木, 迪丽努尔·塔力甫. 乌鲁木齐市采暖期大气$PM_{2.5-10}$、$PM_{2.5}$中重金属和多环芳烃的分布及其相关性[J]. 环境化学, 2013, 32(4): 706−707. [Keremula Suduer, Abudalimu Yilimire, Talifu Dilinuer. Distribution and correlation of heavy metals, and polycyclic aromatic hydrocarbons in atmospheric $PM_{2.5-10}$ and $PM_{2.5}$ during the heating period in Urumqi [J]. Environmental Chemistry, 2013, 32(4): 706−707.]

[13] 李琦路, 吴锦涛, 张颖, 等. 新乡市机动车排放对道路灰尘中重金属与多环芳烃污染的影响[J]. 环境科学, 2019, 40(12): 5258−5264. [Li Qilu, Wu Jintao, Zhang Ying, et al. Effects of vehicle emissions on heavy metals and polycyclic aromatic hydrocarbons pollution in road dust in Xinjiang[J]. Environmental Science, 2019, 40(12): 5258−5264.]

[14] Cui H T, Lu Y L, Zhou Y Q, et al. Spatial variation and driving mechanism of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) emissions from vehicles in China[J]. Journal of Cleaner Production, 2022, 336: 130210, doi: 10.1016/j.jclepro.2021.130210.

[15] 李春华, 朱飙, 杨金虎, 等. 中国区域气候干湿与土壤湿度变化特征及其差异性分析[J]. 干旱区地理, 2024, 47(10): 1674−1687. [Li Chunhua, Zhu Biao, Yang Jinhu, et al. Difference of changing characteristics analysis between climate dry-wet and soil moisture in China[J]. Arid Land Geography, 2024, 47(10): 1674−1687.]

[16] 谢运兴, 唐晓, 郭宇宏, 等. 新疆大气颗粒物的时空分布特征[J]. 中国环境监测, 2019, 35(1): 6−36. [Xie Yunxing, Tang Xiao, Guo Yuhong, et al. Spatial and temporal distribution of atmospheric particulate matter in Xinjiang[J]. Environmental Monitoring in China, 2019, 35(1): 6−36.]

[17] 魏明娜, 谢海燕, 邓文叶, 等. 乌鲁木齐市采暖期与非采暖期大气$PM_{2.5}$和PM_{10}中水溶性离子特征分析[J]. 安全与环境学报, 2017, 17(5): 1986−1991. [Wei Mingna, Xie Haiyan, Deng Wenye, et al. Water-soluble ions pollution characteristics of the atmospheric particles ($PM_{2.5}$ and PM_{10}) in Urumqi during the heating and non-heating periods[J]. Journal of Safety and Environment, 2017, 17 (5): 1986−1991.]

[18] 石小翠, 帕丽达·牙合甫, 宋思醒. 乌鲁木齐市$PM_{2.5}$中水溶性离子特征及来源分析[J]. 环境工程技术学报, 2021, 11(6): 1049−1056. [Shi Xiaocui, Yahefu Palida, Song Sixing. Characteristics and source analysis of water-soluble ions in $PM_{2.5}$ in Urumqi City[J]. Journal of Environmental Engineering Technology, 2021,

11(6): 1049-1056.]

[19] 石小翠, 帕丽达·牙合甫, 宋思醒, 等. 乌鲁木齐市大气$PM_{2.5}$中元素特征及风险评价[J]. 环境科学与技术, 2021, 44(5): 171-178. [Shi Xiaocui, Yahefu Palida, Song Sixing, et al. Element characteristics and risk assessment of atmospheric $PM_{2.5}$ in Urumqi[J]. Environmental Science & Technology, 2021, 44(5): 171-178.]

[20] 王雨晴, 王胜利, 谷超, 等. 伊犁河谷夏季$PM_{2.5}$中金属元素以源为导向的健康风险评价[J]. 环境化学, 2023, 42(12): 4161-4170. [Wang Yuqing, Wang Shengli, Gu Chao, et al. Source-oriented health risk assessment of $PM_{2.5}$ bound metal elements during summer in Ili Valley[J]. Environmental Chemistry, 2023, 42(12): 4161-4170.]

[21] Wang W, Ding X, Turap Y S, et al. Distribution, sources, risks, and vitro DNA oxidative damage of $PM_{2.5}$-bound atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons in Urumqi, NW China[J]. Science of the Total Environment, 2020, 39: 139518, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.139518.

[22] 胡锋, 王兴磊, 刘云庆, 等. 伊宁市夏季大气$PM_{2.5}$中多环芳烃污染特征及健康风险评价[J]. 环境与健康杂志, 2017, 34(6): 533-535. [Hu Feng, Wang Xinglei, Liu Yunqing, et al. Characteristics and health risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons pollution in $PM_{2.5}$ of Yining City in summer[J]. Journal of Environment and Health, 2017, 34(6): 533-535.]

[23] 万瑜, 曹兴, 崔玉玲, 等. 中天山北坡山区近30 a气候变化特征[J]. 干旱气象, 2012, 30(4): 575-582. [Wan Yu, Cao Xing, Cui Yuling, et al. Analysis of climate change tendency in northern piedmont of middle Tianshan Mountain over recent 30 years[J]. Journal of Arid Meteorology, 2012, 30(4): 575-582.]

[24] Zhang H H, Li R, Huang C P, et al. Seasonal variation of aerosol iron solubility in coarse and fine particles at an inland city in northwestern China[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2023, 23: 3543-3559.

[25] Santos A G, Regis A C D, Rocha G O, et al. A simple, comprehensive, and miniaturized solvent extraction method for determination of particulate-phase polycyclic aromatic compounds in air[J]. Journal of Chromatography A, 2016, 1435: 6-17.

[26] Cui L K, Song X Q, Zhong G Q. Comparative analysis of three methods for HYSPLIT atmospheric trajectories clustering[J]. Atmosphere, 2021, 12(6): 698, doi: 10.3390/atmos12060698.

[27] 杨红, 谢海燕, 鲍昱璇, 等. 阿克苏市春季PM_{10}和$PM_{2.5}$输送路径及潜在源分析[J]. 四川环境, 2022, 41(3): 71-78. [Yang Hong, Xie Haiyan, Bao Yuxuan, et al. Analysis of transmission paths and potential sources of PM_{10} and $PM_{2.5}$ in Aksu in spring[J]. Sichuan Environment, 2022, 41(3): 71-78.]

[28] 张秀芝, 鲍征宇, 唐俊红. 富集因子在环境地球化学重金属污染评价中的应用[J]. 地质科技情报, 2006, 25(1): 65-72. [Zhang Xiuzhi, Bao Zhengyu, Tang Junhong. Application of the enrichment factor in evaluating of heavy metals contamination in the environmental geochemistry[J]. Geological Science and Technology Information, 2006, 25(1): 65-72.]

[29] 中国环境监测总站. 中国土壤元素背景值[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1990: 330-482. [China National Environmental Monitoring Centre. Background values of soil elements in China[M]. Beijing: China Environmental Science Press, 1990: 330-482.]

[30] 赵禹, 赵寒森, 刘拓, 等. 西北地区土地质量地球化学调查进展与主要成果[J]. 西北地质, 2022, 55(3): 140-154. [Zhao Yu, Zhao Hansen, Liu Tuo, et al. Progresses and main achievements of geochemical survey of land quality in northwest China[J]. Northwestern Geology, 2022, 55(3): 140-154.]

[31] Yunker M B, Macdonald R W, Vingarzan R, et al. PAHs in the Fraser River Basin: A critical appraisal of PAH ratios as indicators of PAH source and composition[J]. Organic Geochemistry, 2002, 33(4): 489-515.

[32] Pio C A, Alves C A, Duarte A C. Identification, abundance and origin of atmospheric organic particulate matter in a Portuguese rural area[J]. Atmospheric Environment, 2001, 35(8): 1365-1375.

[33] Paatero P, Tapper U. Positive matrix factorization: A non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values[J]. Environmetrics, 1994, 5(2): 111-126.

[34] Xu A, Mao Y, Su Y W, et al. Characterization, sources and risk assessment of $PM_{2.5}$-bound polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in Huanggang City, central China[J]. Atmospheric Environment, 2021, 252: 118296, doi: 10.1016/j.atmosenv.2021.118296.

[35] T/CSES 36-2021. 区域环境污染健康风险评估技术导则[S]. 北京: 中国环境科学学会, 2021. [T/CSES 36-2021. Technical guidelines for health risk assessment of regional environmental pollution[S]. Beijing: Chinese Society for Environmental Sciences, 2021.]

[36] Ma L X, Li B, Liu Y P, et al. Characterization, sources and risk assessment of $PM_{2.5}$-bound polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and nitrated PAHs (NPAHs) in Harbin, a cold city in northern China[J]. Journal of Cleaner Production, 2020, 264: 121673, doi: 10.1016/j.jclepro.2020.121673.

[37] United States Environmental Protection Agency. Regional screening levels (RSLs)[EB/OL]. [2024-03-14]. https://www.epa.gov/risk/regional-screening-levels-rsls.

[38] Fadel M, Ledoux F, Afif C, et al. Human health risk assessment for PAHs, phthalates, elements, PCDD/Fs, and DL-PCBs in $PM_{2.5}$ and for NMVOCs in two East-Mediterranean urban sites under industrial influence[J]. Atmospheric Pollution Research, 2022, 13 (1): 101261, doi: 10.1016/j.apr.2021.101261.

[39] GB 3095-2012. 环境空气质量标准[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2012. [GB 3095-2012. Environmental air quality standards [S]. Beijing: China Environmental Science Press, 2012.]

[40] Meng Y, Li R, Zhao Y L, et al. Chemical characterization and sources of $PM_{2.5}$ at a high-alpine ecosystem in the southeast Tibetan Plateau, China[J]. Atmospheric Environment, 2020, 235: 117645, doi: 10.1016/j.atmosenv.2020.117645.

[41] 李慧明, 钱新, 冷湘梓, 等. 南京市$PM_{2.5}$中金属元素污染特征及健康风险[J]. 环境监控与预警, 2021, 13(1): 7−13. [Li Huiming, Qian Xin, Leng Xiangzi, et al. Pollution characteristics and health risks of metal elements in $PM_{2.5}$ from Nanjing[J]. Environmental Monitoring and Forewarning, 2021, 13(1): 7−13.]

[42] 刘婷, 赵长盛, 陈庆锋, 等. 济南市春季大气颗粒物重金属的分布特征[J]. 环境科技, 2020, 33(6): 53−57. [Liu Ting, Zhao Changsheng, Chen Qingfeng, et al. Distribution characteristics of heavy metals in air particulates in spring in Jinan[J]. Environmental Science and Technology, 2020, 33(6): 53−57.]

[43] 朱焱涛. 西安市北郊大气细颗粒物重金属特征及健康风险评价研究[D]. 西安: 西安建筑科技大学, 2022. [Zhu Yantao. Heavy metal characteristics and health risk assessment of fine particulate matter in the northern suburb of Xi'an City[D]. Xi'an: Xi'an University of Architecture and Technology, 2022.]

[44] Wu Y F, Shi Y, Zhang N, et al. Pollution levels, characteristics, and sources of polycyclic aromatic hydrocarbons in atmospheric particulate matter across the Hu line in China: A review[J]. Environmental Chemistry Letters, 2021, 19: 3821−3836.

[45] 高洪亮. 黄河三角洲背景点$PM_{2.5}$中多环芳烃及其衍生物的污染特征和来源解析[D]. 济南: 山东大学, 2021. [Gao Hongliang. Source appointment and pollution characteristics of PAHs and their derivatives in $PM_{2.5}$ at the Yellow River Delta background area[D]. Jinan: Shandong University, 2021.]

[46] 雷佩玉, 张峰, 郑晶利, 等. 2016—2018年西安市两城区$PM_{2.5}$中多环芳烃污染特征分析[J]. 卫生研究, 2020, 49(5): 765−774. [Lei Peiyu, Zhang Feng, Zheng Jingli, et al. Analysis of polycyclic aromatic hydrocarbons pollution characteristics in $PM_{2.5}$ in two districts of Xi'an City from 2016 to 2018[J]. Journal of Hygiene Research, 2020, 49(5): 765−774.]

[47] 胡芸迪, 杜小红, 戚发秋, 等. 西北某工业区周围空气采暖期与非采暖期$PM_{2.5}$中多环芳烃污染特征、来源分析及人群健康风险评估[J]. 现代预防医学, 2022, 49(2): 227−231, 235. [Hu Yundi, Du Xiaohong, Qi Faqiu, et al. Pollution characteristics, source analysis and population health risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in $PM_{2.5}$ during heating and non-heating periods in an industrial area in northwest China[J]. Modern Preventive Medicine, 2022, 49(2): 227−231, 235.]

[48] 张煜娴, 曹芳, 贾小芳, 等. 中国主要背景区域冬季$PM_{2.5}$中非极性有机化合物组成及来源解析[J]. 地球与环境, 2022, 50(1): 45−57. [Zhang Yuxian, Cao Fang, Jia Xiaofang, et al. Composition and source apportionment of non-polar organic compounds in $PM_{2.5}$ in winter in major background regions of China[J]. Earth and Environment, 2022, 50(1): 45−57.]

[49] Zhang J M, Yang L X, Mellouki A, et al. Diurnal concentrations, sources, and cancer risk assessments of $PM_{2.5}$-bound PAHs, NPAHs, and OPAHs in urban, marine and mountain environments[J]. Chemosphere, 2018, 209: 147−155.

[50] 甄钟秀. 华北平原大气多环芳烃的观测和模拟研究[D]. 南京: 南京信息工程大学, 2024. [Zhen Zhongxiu. Observation and simulation of atmospheric polycyclic[D]. Nanjing: Nanjing University of Information Science and Technology, 2024.]

[51] Su T N, Li Z Q, Kahn R. Relationships between the planetary boundary layer height and surface pollutants derived from lidar observations over China: Regional pattern and influencing factors[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018, 18(21): 15921−15935.

[52] Wu S P, Wang X H, Yan J M, et al. Diurnal variations of particle-bound PAHs at a traffic site in Xiamen, China[J]. Aerosol and Air Quality Research, 2010, 10(5): 497−506.

[53] Keyte I J, Harrison R M, Lammel G. Chemical reactivity and long-range transport potential of polycyclic aromatic hydrocarbons: A review[J]. Chemical Society Reviews, 2013, 42(24): 9333−9391.

[54] 马迎慧. 南京及周边地区不同环境$PM_{2.5}$污染特征及来源解析[D]. 南京: 南京信息工程大学, 2017. [Ma Yinghui. Pollution characteristics and source apportionment of $PM_{2.5}$ in Nanjing and its surrounding areas[D]. Nanjing: Nanjing University of Information Science and Technology, 2017.]

[55] 凌再莉, 宋世杰, 黄韬. 新疆博斯腾湖地区PM_{10}中多环芳烃的污染特征、来源及健康风险评价[J]. 地球与环境, 2024, 52(1): 29−40. [Ling Zaili, Song Shijie, Huang Tao. Pollution, sources, and health risk assessment of PM_{10}-bound polycyclic aromatic hydrocarbons in Bosten Lake area, Xinjiang[J]. Earth and Environment, 2024, 52(1): 29−40.]

[56] 苏都尔·克热木拉. 乌鲁木齐南部$PM_{2.5}$对质粒DNA的损伤剂量及与PAHs、重金属之间的相关性研究[D]. 乌鲁木齐: 新疆大学, 2014. [Kerelula Suduer. Study on the correlation between the toxic dosages of $PM_{2.5}$ on plasmid DNA and PAHs, heavy metals in southern Urumqi atmospheric[D]. Urumqi: Xinjiang University, 2014.]

Characteristics, sources and health risk assessment of $PM_{2.5}$-bound heavy metals and polycyclic aromatic hydrocarbons pollution in middle Tianshan Mountains

CHAI Mingchen[1], XU Guojie[1], ZHEN Zhongxiu[2], YIN Yan[1], ZHENG Bohua[3,4], CHEN Kui[5], LI Bin[3,4], LI Yuanyuan[3,4]

(1. China Meteorological Administration Aerosol-Cloud and Precipitation Key Laboratory, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, Jiangsu, China; 2. School of Ecology and Environment, Inner Mongolia University, Hohhot 010021, Inner Mongolia, China; 3. Weather Modification Office of Xinjiang Uygur Autonomous Region, Urumqi 830002, Xinjiang, China; 4. Xinjiang Weather Modification Engineering Technology Research Centre, Urumqi 830002, Xinjiang, China; 5. School of Emergency Management, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, Jiangsu, China)

Abstract: To investigate the pollution characteristics of $PM_{2.5}$ in the middle Tianshan Mountains, $PM_{2.5}$ samples were collected in Wulasitai region of the middle Tianshan Mountains from July to September 2019. Heavy metal contents were analyzed using inductively coupled plasma-mass spectrometry (ICP-MS), while polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) were examined using gas chromatography-mass spectrometry (GC-MS). The study explored the sources and health effects of heavy metals and PAHs in $PM_{2.5}$. The key results are as follows: (1) Concentrations of heavy metals and PAHs during summer and autumn in the middle Tianshan Mountains were relatively low. The average concentration levels of each element were: Fe>Cu>Zn>Pb>Mn>Cr>As>V>Rb>Ni>Co>Se>Cd>Tl. The total average heavy metal concentration was 238.50 $ng\cdot m^{-3}$, with Fe (139.90 $ng\cdot m^{-3}$) and Cu (78.72 $ng\cdot m^{-3}$) being dominant, while other elements were below 10 $ng\cdot m^{-3}$. The total average concentration of PAHs was 1.37 $ng\cdot m^{-3}$, with 3-ring, 4-ring, and 5−7 ring PAHs concentration accounting for 3.59%, 32.34%, and 64.07%, respectively. (2) During the observation period, $PM_{2.5}$ was influenced by long-distance transport from the west and short-distance transport from the north and west. It may also have been affected by local valley wind and boundary layer changes. (3) Positive matrix factorization (PMF) identified key pollution sources, including natural gas combustion and petroleum sources (28.56%), vehicle emissions and coal burning (28.46%), biomass burning and industrial pollution (16.14%), non-ferrous metal smelting (14.32%), and dust (12.52%). (4) Direct inhalation of $PM_{2.5}$ posed a carcinogenic risk to adults and children due to heavy metals and PAHs, with Cr, Co, As, and Se identified as high-risk substances. Non-carcinogenic health risks were relatively low.

Key words: $PM_{2.5}$; heavy metals; polycyclic aromatic hydrocarbons; pollution characteristics; source analysis; middle Tianshan Mountains